

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2002-293619

(43)Date of publication of application : 09.10.2002

(51)Int.Cl.

C04B 35/46

C04B 35/00

C04B 35/495

H01B 3/00

H01G 4/12

(21)Application number : 2001-095667

(71)Applicant : TDK CORP

(22)Date of filing : 29.03.2001

(72)Inventor : SOGABE TOMOHIRO
SASAKI MASAMI
KOBUE HISASHI
AKACHI YOSHIKI

(54) DIELECTRIC COMPOSITE MATERIAL AND PRODUCTION METHOD THEREFOR

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To improve the dielectric constant and quality coefficient of a high dielectric constant material in electronic parts obtained by combining the high dielectric constant material with a low dielectric constant material.

SOLUTION: The dielectric composite material has been produced by compounding spherical dielectric powder with resin heretofore. In this method, the dielectric powder is made into the flaky (flat) shape, thus interfacial polarization is generated in the material, thereby improving its dielectric constant.



図1 本発明に係る扁平状電界材料



図2 従来の球形電界材料

LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

22.04.2004

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号
特開2002-293619
(P2002-293619A)

(43) 公開日 平成14年10月9日 (2002.10.9)

(51) Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	テーマコード*(参考)
C 0 4 B 35/46		C 0 4 B 35/46	D 4 G 0 3 0
35/00		H 0 1 B 3/00	A 4 G 0 3 1
35/495		H 0 1 G 4/12	3 5 8 5 E 0 0 1
H 0 1 B 3/00		C 0 4 B 35/00	5 G 3 0 3
H 0 1 G 4/12	3 5 8		J

審査請求 未請求 請求項の数 5 O L (全 4 頁)

(21) 出願番号 特願2001-95667(P2001-95667)

(22) 出願日 平成13年3月29日 (2001.3.29)

(71) 出願人 000003067

ティーディーケー株式会社
東京都中央区日本橋1丁目13番1号

(72) 発明者 曾我部 智浩
東京都中央区日本橋一丁目13番1号 ティーディーケー株式会社内

(72) 発明者 佐々木 正美
東京都中央区日本橋一丁目13番1号 ティーディーケー株式会社内

(74) 代理人 100116517
弁理士 小林 邦雄 (外1名)

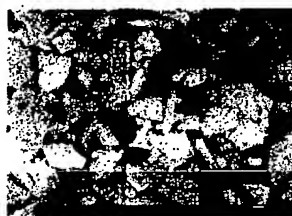
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 誘電体複合材料及びその製造方法

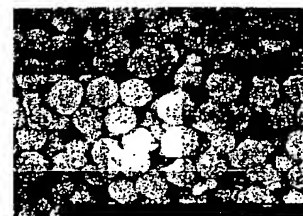
(57) 【要約】

【課題】セラミックス粉末は、球状であるために界面分極が小さく、誘電率は10程度と低く、品質係数Qも350程度と低いものであった。そこで、高誘電率材料と低誘電率材料とを組み合わせた電子部品における該高誘電率材料の誘電率及び品質係数の向上が望まれていた。

【解決手段】従来は、球状の誘電体粉と樹脂を複合することにより、誘電体複合材料を製作していたが、その誘電体粉を鱗片状（扁平状）に変えることにより材料内に界面分極が発生し誘電率を向上させることができた。



(A) 本願発明に係る扁平誘電体粉末



(B) 従来の球状誘電体粉末

【特許請求の範囲】

【請求項1】誘電体粉末及び樹脂から成る誘電体複合材料において、上記誘電体粉末は、球形度が0.6以下の扁平粉末であることを特徴とする誘電体複合材料。

【請求項2】請求項1記載の誘電体複合材料において、上記誘電体粉末を一方方向に配向させたことを特徴とする複合材料。

【請求項3】誘電体をペースト化し、これをドクターブレード法によってシート化し、次に焼成及び粉碎することを特徴とする誘電体扁平粉末の製造方法。

【請求項4】請求項3の方法により製作された誘電体扁平粉末。

【請求項5】誘電体粉末が請求項4記載のものである請求項1記載の複合材料。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】本願発明は、誘電体材料に関し、特に樹脂とセラミックスを複合した誘電体材料において、高誘電率を有する誘電体複合材料に関するものである。

【0002】

【従来の技術】従来、誘電体材料を用いた電子部品は、高い誘電率を有する誘電体材料によって構成されている。このような電子部品においては、基体自体が高誘電率材料による構造体であるため、各素子の電極間あるいは入力端子、出力端子、接地端子等の端子間に分布容量が発生し、隣接する素子へ信号の漏洩によるクロストークあるいはノイズの漏洩が起こり易く、また、共振器の場合には、共振周波数等の設定周波数にずれが生じるという問題点があった。このような問題点を解決するため、高誘電率セラミックスにより構成される複数のコンデンサ間に低誘電率セラミックスを設けたものが、例えば、特開平3-35515号公報等においてなされている。

【0003】ところが、低誘電率材料及び高誘電率材料が共にセラミックスであるものにおいては、一体焼成時の処理工程で個々のセラミックスの熱膨張係数の違いにより熱クラックが発生するという問題点があった。これに対処するため、従来は、これらの低誘電率材料及び高誘電率材料のいずれか一つをセラミックスと樹脂との複合材料で形成するものが知られている（特開2000-58373号公報参照）。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】しかし、上記従来の複合材料において用いられているセラミックス粉末は、球状であるために界面分極が小さく誘電率が10程度と低いものであり、品質係数Qも350程度と低いものであった。そこで、高誘電率材料及び低誘電率材料とを組み合わせた電子部品における該高誘電率材料の誘電率及び品質係数の向上が望まれていた。

【0005】

【課題を解決するための手段】従来、誘電体複合材料を製作するには、球状の誘電体粉と樹脂を複合することにより行われていたが、本願発明においては、その球状の誘電体粉を扁平状（鱗片状）の誘電体粉末に変えることにより誘電率及び品質係数を向上させることが可能となった。

【0006】

【発明の実施の形態】この扁平状誘電体粉を形成するには、まず、0.05～数 μm 程度に粉碎した誘電体粉に種々の有機系または水系溶剤を添加しペースト化する。次に、このペーストをシート化工法（ドクターブレード法）により、数 μm から数十 μm の厚みでシート化し焼成する。このシートされたものを粉碎して扁平粉を作製することができる。

【0007】ここで、扁平状を定量的に表現するために、球形度を

球形度＝（粒子と同じ体積を有する球の表面積）／（粒子の表面積）

と定義すると、扁平状とは、球形度が0.6以下のものを言うこととする。

【0008】上記球形度が0.6以下の扁平状誘電体粉末と樹脂を混合し、シート成形することにより誘電体粒子を一方方向に揃えることができ、これによりシート面方向の誘電率を向上させることができる。

【0009】このような、誘電体材料としては、 Mg_2SiO_4 系、 MgTiO_3 — CaTiO_3 、 BaTi_2O_9 系、 BaO — Al_2O_3 系、 $(\text{Zn}, \text{Sn})\text{TiO}_4$ 、 BaO — Nd_2O_3 — TiO_2 — BiO_3 系、 $\text{Ba}(\text{Mg}, \text{Sn}, \text{Ta})\text{O}_3$ 系、 $(\text{Zn}, \text{Sn})\text{TiO}_4$ 系、 $(\text{Ba}, \text{Pb})\text{O}$ — Nd_2O_3 — TiO_2 、 $\text{Ba}(\text{Zn}, \text{Zr}, \text{Ta})\text{O}_3$ 系、 BaO — SrO — SiO_2 — ZrO_2 系、 CaZrO_3 — SrTiO_3 — MnO_2 — SiO_2 系の材料が望ましい。

【0010】上記樹脂としては、エポキシ系、ポリイミド系、ポリフェニレンエーテル系、ビニルベンジル系、ポリエーテルイミド系、フッ素樹脂等の樹脂である。

【0011】上記エポキシ樹脂としては、樹脂組成物であれば、多官能性エポキシ樹脂と、ビスフェノールA型高分子エポキシ樹脂と、硬化剤としてのビスフェノールA型ノボラック樹脂との混合物であって、特開平9-59486号公報に示されている材料を用いることができる。より詳しくは、多官能性エポキシ樹脂30wt%～80wt%、ビスフェノールA型高分子エポキシ樹脂10wt%～40wt%、テトラフェニロールエタン型エポキシ樹脂5wt%～35wt%を主成分とし、該主成分100重量部に対して硬化剤としてビスフェノールA型ノボラック樹脂5～30重量部、硬化促進剤としてイミダゾール0.1～5重量部のエポキシ樹脂組成物である。

【0012】また、ビニルベンジル系樹脂は、具体的には、スチレン、核置換スチレン、例えばメチルスチレン、ジメチルスチレン、エチルスチレン、イソプロピルスチレン、クロルスチレン、 α -置換スチレン、例えば α -メチルスチレン、 α -エチルスチレン、*o*-, *m*-, *p*-ジビニルベンゼン（好ましくは*m*-, *p*-ジビニルベンゼン、特に好ましくは*p*-ジビニルベンゼン）等の各単量体の（共）重合体である。ビニルベンジル系重合体は単独で使用することも、2種以上併用することもできる。

【0013】なかでも、ジビニルベンゼンの単量体を含むビニルベンジル系共重合体が耐熱性を向上させる上で好ましい。ジビニルベンゼンを含むビニルベンジル共重合体とは、具体的には、スチレン、核置換スチレン、例えばメチルスチレン、ジメチルスチレン、エチルスチレン、イソプロピルスチレン、クロルスチレン、 α -置換スチレン、例えば α -メチルスチレン、 α -エチルスチレン等の各単量体とジビニルベンゼンの単量体の共重合体である。

【0014】

【実施例】（扁平粉の作製）平均粒径0.1 μ mに粉碎したBaTiO₃粒子に有機ビヒクルを加えてボールミルで約12時間混合しペースト状にする。このペースト状のものをドクターブレード法により約10 μ mの厚みのシートに形成する。これを、大気中1300°Cで焼成し、乳鉢で粉碎し扁平粉を作製する。

【0015】これを、図1を参照しながら説明すると、本願発明に係る扁平状BaTiO₃粉末焼結体は、図1（A）に見られるように、方向性は未だ定まらないが平均して20 μ m程度の扁平状の粒子（破片）である。これに対し、同じ誘電体をボールミルで湿式粉碎しPVAを添加してスプレードライヤーで10~20 μ m程度の顆粒を作成し、同じ温度において焼成し焼成顆粒を得た。その粒子の模様は、図1（B）に見られるように、球状の粒子である。

【0016】（複合材料の作製）エポキシ樹脂に界面活性剤と、上記方法で作成した扁平状のチタン酸バリウム系誘電体をボールミルで12時間混合する。混合後、ポットから取り出しシート化して110°Cにおいて2時間乾燥する。乾燥した複合材料を粉碎し、複合材料粉末を得る。この複合材料粉末を100~200°Cで加熱成形し複合材料基板を作成する。

【0017】なお、本発明において、使用できるセラミックスの平均粒度範囲は、0.1 μ m~50 μ m、より最適平均粒度範囲は0.5 μ m~30 μ mである。0.1 μ mより小さいと、粒子が嵩ばり、表面積が大となり、ペーストが製造しにくくなる。また、粒度が50 μ mを超えると、成形品の凹凸が激しくなり、成形性が悪くなる。

【0018】エポキシ樹脂は、多官能性エポキシ樹脂と

して、エピビス型エポキシ系樹脂（油化シェルエポキシ社製エピコート1001：エポキシ当量470およびエピコート1007：エポキシ当量1950）をそれぞれ26.9wt%ずつ含有させ、また、ビスフェノールA型高分子エポキシ樹脂（油化シェルエポキシ社製エピコート1225：エポキシ当量2000）23.1wt%、特殊骨格を持つエポキシ樹脂として、テトラフェニロールエタン型エポキシ樹脂（油化シェルエポキシ社製エピコート1031S：エポキシ当量196）23.1wt%をそれぞれ含むものを主成分とし、硬化剤として、ビスフェノールA型ノボラック樹脂（油化シェルエポキシ社製YLH129B65：水産基当量118g/eq）と、硬化促進剤としてイミダゾール化合物（四国化成工業社製2E4MZ）とを加えたものを使用した。

【0019】樹脂とセラミックスとの混合方法は、これらの混合物を500mlのポリポット中に入れ、攪拌のために10mmφのジルコニアボールに入れた。これをボールミル法により10時間以上回転させ混合させた。

【0020】次に上述のように混合を終えたペーストのシート化は、これらに溶剤を加えるかあるいは加えないで一般的なドクターブレード法によりシートが所定の厚みになるように行った。

【0021】以上のようにして作成した複合材料基板断面を図2に示す。図2（A）には、本願発明に係る扁平状チタン酸バリウム粉末を用いた複合材料基板断面の走査型電子顕微鏡写真であり、写真に垂直方向に誘電体が配向されており、写真の上下方向（シート面方向）の誘電率が向上している。これに対し、図2（B）は、従来の球状誘電体粉末を用いた複合材料基板断面の走査型電子顕微鏡写真であり、誘電体は球状であり、どの方向にも誘電率は変わらない。

【0022】このようにして形成した基板に対し、2GHzで誘電率及び品質係数を調べたところ、球状誘電体粉末を用いたものにおいては、誘電率及び品質係数は、それぞれ、9.9及び350であったが、扁平状誘電体粉末を用いたものでは、それぞれ13.2及び415と向上していた。この効果は、チタン酸バリウムとエポキシ樹脂との複合材料についての数値であるが、その他の材料でも同様な効果が得られた。

【0023】

【発明の効果】本願発明によれば、シート面方向の誘電率は、従来の球状の誘電体と比較すると、約3割程度向上し、品質係数0も2割程度向上する。また、製造方法も、扁平粉がドクターブレード法により容易に作製することができるので、高周波用複合材料を容易に製造することができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】（A）は、本願発明に係る扁平状チタン酸バリウム粉末の走査型電子顕微鏡写真、（B）は、従来のチタン酸バリウム粉末焼結体の走査型電子顕微鏡写真

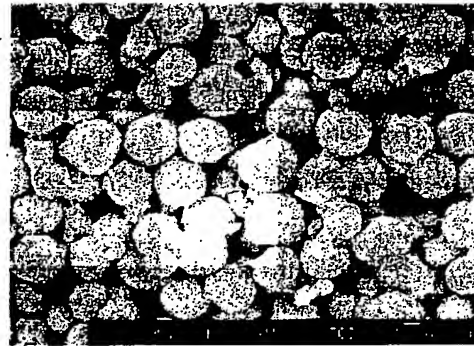
【図2】(A)は、本願発明に係る扁平状チタン酸バリウム粉末を用いた複合材料基板断面の走査型電子顕微鏡

写真、(B)は、従来の球状チタン酸バリウム粉末を用いた複合材料基板断面の走査型電子顕微鏡写真

【図1】



(A) 本願発明に係る扁平誘電体粉末

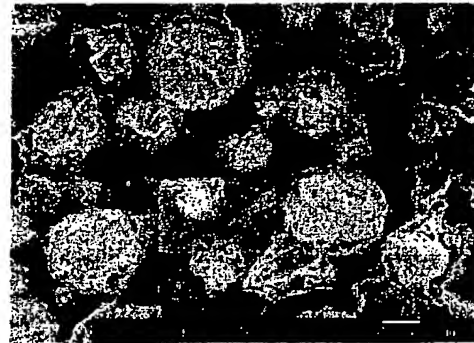


(B) 従来の球状誘電体粉末

【図2】



(A) 扁平状粉末を用いた基板の断面図



(B) 球状粉末を用いた基板の断面図

フロントページの続き

(72) 発明者 小更 恒
東京都中央区日本橋一丁目13番1号 ティーディーケー株式会社内
(72) 発明者 赤地 義昭
東京都中央区日本橋一丁目13番1号 ティーディーケー株式会社内

40

Fターム(参考) 4G030 AA10 AA16 BA09 CA02 CA04
CA08 GA18 GA19
4G031 AA06 AA11 BA09 CA02 CA04
CA08 GA05 GA06
5E001 AB03 AE01 AE02 AE03
5G303 AA10 AB06 AB08 BA12 CA01
CA09 CB03 CB35 DA01